

(様式 11)

平成 28 年 2 月 16 日

学 位 論 文 審 査 要 旨 (課程博士)

東京農工大学大学院工学府長 殿

審査委員 主査 滝山 博志  
副査 徳山 英昭  
副査 細見 正明  
副査 山下 善之  
副査 寺田 昭彦  
副査



学位申請者	応用化学専攻 平成 25 年度入学 学籍番号 13832301
	氏名 佐藤 龍一
申請学位	博士 (工学)
論文題目	酵素固定化高分子ゲルの創製
論文審査要旨 (2000 字程度) 本論文では、高分子ゲルの多孔質構造の制御および機能性高分子の適用の 2 つの観点から、高性能 (フリー酵素と同等以上の見かけの反応速度、長期の繰り返し利用が可能) な酵素固定化高分子ゲルを開発した。具体的には、ゲルの合成と同時の酵素の新規な包括固定技術を提案・確立し、水媒体中の酵素反応および油性媒体中の酵素反応のそれぞれに適用できる種々の酵素固定化高分子ゲルを開発した。高分子ゲルの多孔質構造の制御では、多孔質高分子ゲルの合成と同時にゲル内の独立したマクロ孔に酵素を包括固定する技術を確立した。具体的には、孔の鑄型に油滴、水滴、またはマイクロカプセルを用い、予め酵素を内包した鑄型を分散させたプレゲル溶液をゲル化させた後に鑄型を洗浄または化学処理により除去することで多孔質ゲルを作製した。この方法の利点は、酵素を重合反応場に曝さずに失活させることなく多孔質ゲルの孔に包括固定できること、および多孔質構造が物質の良好な拡散透過性を供して見掛けの反応速度を増大できることである。機能性高分子の適用では、両親媒性モノマーと親水性モノマーを用いて、油性媒体中の酵素反応でもゲル内の酵素に至適な水環境を供する酵素固定化両親媒性ゲルを開発した。	

第1章「序論」では、酵素の固定技術と工業的な応用についてまとめた。特に、近年の多孔質ゲルおよび機能性ゲルを担体に用いた固定化酵素に関する研究を調査してまとめた。

第2章「O/W エマルションゲル化法を用いた酵素固定化多孔質ハイドロゲルの作製と加水分解反応特性」では、多孔質ハイドロゲルの合成と同時に油滴を介して酵素 lipase を重合反応場に曝すことなくその孔の中に包括固定した新規な酵素固定化多孔質 poly(ethylene glycol) methyl ether acrylate (PEGMEA) ハイドロゲルを開発した。triacetin の加水分解反応を行い、多孔質ゲルに固定化された酵素の活性は、担体に未固定のフリー酵素のそれと同程度であり、均質ゲルに固定化された酵素のそれと比べて極めて高かった。

第3章「W/O エマルションゲル化法を用いた酵素固定化多孔質オルガノゲルの作製とエステル化およびエステル交換反応特性」では、多孔質オルガノゲルの合成と同時に水滴を介して lipase を重合反応場に曝すことなくその孔の中に包括固定し、油性媒体中で使用できる酵素固定化多孔質 2-ethylhexylacrylate オルガノゲルを開発した。propylacetate と 1-pentanol のエステル交換反応において、固定化酵素はフリー酵素より高い活性を示し、繰り返し利用可能だった。

第4章「サスペンションゲル化法を用いた複合および多孔質ハイドロゲルの創製」では、calcium alginate マイクロカプセルを内包または鋳型とし、線状 poly(NIPA) (NIPA; *N*-isopropylacrylamide) を添加することで semi-IPN 構造と呼ばれる NIPA 複合ハイドロゲルおよび多孔質ハイドロゲルを作製した。開発したゲルの構造と膨潤および力学的特性の関係性を解明した。

第5章「サスペンションゲル化法を用いた酵素固定化複合および多孔質ハイドロゲルの作製と加水分解反応特性」では、多孔質 polyethylene glycol diacrylate ハイドロゲルの合成と同時にマイクロカプセルを介して lipase を重合反応場に曝すことなくその孔の中に包括固定した酵素固定化複合ゲルおよび多孔質ゲルを開発した。沈降重合法を用いて mm オーダーのゲル粒子を作製した。*p*-nitrophenyl acetate の加水分解反応において、複合ゲルおよび多孔質ゲルに固定化された lipase の活性は同程度であり、両ゲルともに繰り返し利用可能だった。

第6章「油性媒体中で高活性を発現する酵素固定化両親媒性共重合ゲルの作製とエステル化反応特性」では、ゲルの合成（溶媒は水）と同時にゲル内に酵素 lipase を分散して固定化でき、油性媒体中の反応に適用でき、さらに lipase へ至適な水環境を提供できる NIPA-co-PEGMEA ゲルを開発した。oleic acid と ethanol のエステル化反応において、固定化酵素はフリー酵素より高い活性を示し、繰り返し利用可能だった。

第7章「総括」では、本研究で開発した酵素固定化高分子ゲルの成果と今後の展望をまとめた。